

⑫ 公開特許公報 (A)

昭61-112086

⑤ Int. Cl.⁴

識別記号

庁内整理番号

④ 公開 昭和61年(1986)5月30日

C 07 F 7/18

C 03 C 25/02

// C 08 J 5/08

7118-4H

Z-8017-4G

6617-4F

審査請求 未請求 発明の数 1 (全7頁)

⑬ 発明の名称 アミノシラン系カップリング剤

⑭ 特 願 昭59-233677

⑮ 出 願 昭59(1984)11月6日

⑯ 発 明 者 井 ノ 口 博 一 福島市蓬萊町57-9
 ⑯ 発 明 者 渡 辺 昭 比 古 福島市田沢字桜台12番地の3
 ⑯ 発 明 者 吉 田 信 次 郎 東京都品川区旗の台6-18-9-206
 ⑯ 発 明 者 吉 井 正 横浜市港南区最戸1-17-3-304
 ⑯ 発 明 者 米 内 山 太 司 横須賀市浦賀丘2丁目21番2号
 ⑰ 出 願 人 日 東 紡 績 株 式 会 社 福島市郷野目字東1番地
 ⑰ 出 願 人 日 本 ユ ニ カ ー 株 式 会 社 東京都千代田区大手町2丁目6番1号
 ⑱ 代 理 人 弁 理 士 浅 村 皓 外2名

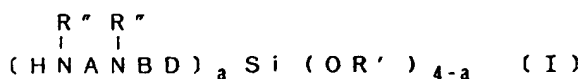
明 細 書

1. 発明の名称

アミノシラン系カップリング剤

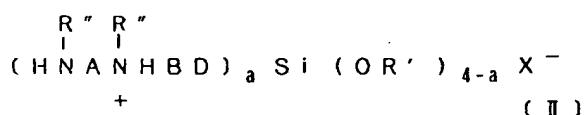
2. 特許請求の範囲

式:



(式中、Aは芳香族炭化水素基、Bは炭化水素基、Dは1~6個の炭素原子を有する脂肪族炭化水素基、R'は水素又は1~4個の炭素原子を有する炭化水素基、R''は水素又は1~4個の炭素原子を有する脂肪族炭化水素基又は芳香族炭化水素基であり、aは1~3である)の化合物、および/または

式:



(式中、A、B、D、R'、R''およびaは前記定義と同じであり、Xはハロゲンである)の化合物

物を含有するアミノシラン系カップリング剤。

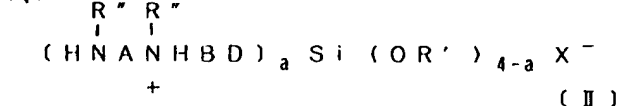
3. 発明の詳細な説明

本発明は、

式:



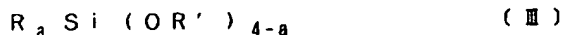
(式中、Aは芳香族炭化水素基、Bは炭化水素基、Dは1~6個の炭素原子を有する脂肪族炭化水素基、R'は水素又は1~4個の炭素原子を有する炭化水素基、R''は水素又は1~4個の炭素原子を有する脂肪族炭化水素基又は芳香族炭化水素基であり、aは1~3である)の化合物、および/または



(式中、A、B、D、R'、R''およびaは前記定義と同じであり、Xはハロゲンである)の化合物を含有するアミノシラン系カップリング剤に関する。

本発明に使用する前記式 (I) および (II) の新規なアミノシラン系化合物は、

式：



(式中、R はエポキシ基、イソシアネート基又はハロゲンを含む炭化水素基であり、a は 1 ~ 3 であり、R' は水素又は 1 ~ 4 個の炭素原子を含む炭化水素基である) の化合物と、

式：



(式中、R'' は水素又は 1 ~ 4 個の炭素原子を含む脂肪族炭化水素基又は芳香族炭化水素基であり、A は芳香族炭化水素基である) の化合物とを反応させることにより製造することができる。

シラン化合物は、ガラス繊維の処理剤としてよく知られているが、従来この用途に供せられている。例えばアミノプロピルトリメトキシシラン、アグリシドキシプロピルトリメトキシシランなどは耐熱性が不十分であり、最近とみに耐熱

性を要求される電子部品材料である積層板などの用途に供することができない。

本発明者は、かかる用途に十分耐え得るガラス繊維用処理剤を鋭意検討し、芳香族環を有したジアミノ化合物とエポキシ基、イソシアネート基またはハロゲンを有するシラン化合物との付加または縮合によつて生成する本発明のごときアミノシラン化合物を見出した。

本発明のアミノシラン系カップリング剤を製造するのに用いられる式 (III) および (IV) の化合物の好適例においては、式 (III) 中のエポキシ基を含む炭化水素基としては、β-(3, 4-エポキシシクロヘキシル)エチル、α-グリシドキシプロピル、4-(3, 4-エポキシ)フェニル等があり、イソシアネート基を含む炭化水素基としてはα-イソシアネートプロピルがあり、ハロゲンを含む炭化水素基としては、2-クロロエチル、3-クロロプロピル等があり、また式 (IV) 中の芳香族アミノ化合物としては、p-ジアミノベンゼン、4, 4'-ジアミノジフェニル

ルスルホン、4, 4'-ジアミノジフェニルエーテル、4, 4'-ジアミノジフェニルメタン等がある。また前記式 (I)、(II) および (IV) 中の A としては、例えばフェニル、ジフェニルメタン、ジフェニルエーテル又はジフェニルスルホン等があり、また B としては、例えばシクロヘキサノール、2-ヒドロキシプロピルまたはウレイド等があるがその他の炭化水素基でもよい。

また本発明のアミノシランを得るために、溶剤を使用することが望ましく好適例としては、エポキシ基またはアミノ基と反応する官能基を含有しない溶媒であるが、特に本発明のアミノシランが可溶化するジメチルホルマミド、ジメチルアセタミドなどを使用することが望ましい。触媒については、アミノ基とエポキシ基の反応またはアミノ基とハロゲン化炭化水素から脱塩酸を行なえる、脱塩酸剤などの使用も可能である。

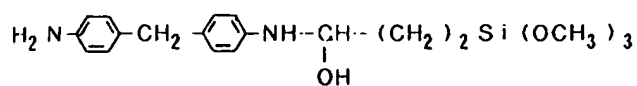
次に、本発明を具体的に説明するために本発明の実施例を示す。以下の実施例は、本発明を限定するものではない。「部」はすべて重量部である。

実施例 1

あらかじめ内部を乾燥窒素で置換した 2 l の四ツ口フラスコに、4, 4'-ジアミノジフェニルメタン 29.7 部 (1.5 モル) とジメチルスルホキシド 83.2 部を添加し、窒素下で溶液が 130℃ になるまで加熱攪拌する。内容物の温度が 130℃ に達した後、滴下ロートから β-(3, 4-エポキシシクロヘキシル)エチルトリメトキシシラン 36.9 部 (1.5 モル) を 1 時間かけてゆつくり滴下する。この添加操作は、遠流冷却塔を付して行ない、内容物が系外に漏洩することを防止する。

130℃ で遠流下反応を 10 時間以上行ない、赤外分光光度計を用い、910 cm⁻¹ にエポキシに起因する特性吸収のないことを確認してから、反応系をゆつくり冷却する。

溶媒を除去した生成物は、IR および元素分析から下記分子式に相当するものであることを確認した。



◎ IR 分析

$\nu-\text{OH}$	1260 cm^{-1}
$\nu=\text{NH}$	1310 cm^{-1}

◎ 元素分析

	C (%)	H (%)	Si (%)
計算値	64.8	8.2	6.3
分析値	64.4	8.1	6.5

実施例 2

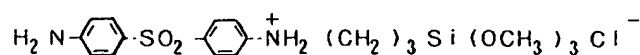
あらかじめ内部を乾燥窒素で置換した2ℓの四ツ口フラスコに、4,4'-ジアミノジフェニルエーテル300.3部(1.5モル)とジメチルホルマミド828.6部を添加し、窒素雰囲気下で溶液が120℃になるまで加熱攪拌する。内容物の温度が120℃に達した後、滴下ロートからγ-イソシアネートプロピルトリメトキシシラン371.1部(1.5モル)を1時間かけて滴下する。これらの反応操作は、遠流冷却器を付して

ルホン372.8部(1.5モル)とジメチルスルホキシド829.4部を添加し、窒素雰囲気下で溶液が140℃になるまで加熱攪拌する。内容物の温度が140℃に達した後、滴下ロートからγ-クロロプロピルトリメトキシシラン

297.8部を滴下する。これらの反応操作は、遠流冷却器を付して行ない、内容物が系外に留出することを防止する。

140℃で反応を20時間行ない、赤外分光光度計を用い、 680 cm^{-1} 付近の塩化アルキルに起因する特性吸収を消失したことを確認してから、反応系をゆつくり冷却する。

溶媒を除去した生成物は、IRおよび元素分析から下記の分子式に相当するものであることを確認した。



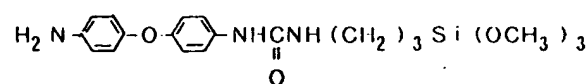
◎ IR 分析

$\nu=\text{NH}_2\text{Cl}^-$	1660 cm^{-1}
------------------------------	-----------------------

行ない、内容物が系外に留出することを防止する。

120℃で反応を5時間行ない、赤外分光光度計を用い、 2270 cm^{-1} 付近のイソシアネート基に起因する特性吸収が消失したことを確認してから、反応系をゆつくり冷却する。

溶媒を除去した生成物は、IRおよび元素分析から下記の分子式に相当するものであることを確認した。



◎ IR 分析

$\nu-\text{NHCONH}-$	1690 cm^{-1}
----------------------	-----------------------

◎ 元素分析

	C (%)	H (%)	Si (%)
計算値	56.3	6.7	6.9
分析値	56.0	6.6	7.0

実施例 3

あらかじめ内部を乾燥窒素で置換した2ℓの四ツ口フラスコに4,4'-ジアミノジフェニルス

◎ 元素分析

	C (%)	H (%)	Si (%)
計算値	48.4	6.1	6.3
分析値	48.3	6.0	6.4

実施例 4

その他、各種の反応例を第1表に示す。但し、表中の溶媒は下記の略号を使用する。

DMSO : ジメチルスルホキシド

DMAC : ジメチルアセタミド

DMF : ジメチルホルマミド

HMPA : ヘキサメチルホスホルアミド

第 1 表

化合物	原 料	溶 媒	条 件		生 成 物
			温 度 ℃	時間	
1	$\text{H}_2\text{N}-\text{C}_6\text{H}_4-\text{CH}_2-\text{C}_6\text{H}_4-\text{NH}_2$ $\text{O}=\text{C}(\text{H})-(\text{CH}_2)_2\text{Si}(\text{OCH}_3)_3$	DMSO	130	10	$\text{H}_2\text{N}-\text{C}_6\text{H}_4-\text{CH}_2-\text{C}_6\text{H}_4-\text{NH}-\text{C}(\text{H})(\text{OH})-(\text{CH}_2)_2\text{Si}(\text{OCH}_3)_3$
2	$\text{H}_2\text{N}-\text{C}_6\text{H}_4-\text{CH}_2-\text{C}_6\text{H}_4-\text{NH}_2$ $\text{CH}_2=\text{CHCH}_2\text{O}(\text{CH}_2)_3\text{Si}(\text{OCH}_3)_3$	DMAC	130	12	$\text{H}_2\text{N}-\text{C}_6\text{H}_4-\text{CH}_2-\text{C}_6\text{H}_4-\text{NHCH}_2\text{CH}(\text{OH})\text{CH}_2\text{O}(\text{CH}_2)_3\text{Si}(\text{OCH}_3)_3$
3	$\text{H}_2\text{N}-\text{C}_6\text{H}_4-\text{CH}_2-\text{C}_6\text{H}_4-\text{NH}_2$ $\text{Cl}(\text{CH}_2)_3\text{Si}(\text{OCH}_3)_3$	D M F	140	20	$\text{H}_2\text{N}-\text{C}_6\text{H}_4-\text{CH}_2-\text{C}_6\text{H}_4-\text{NH}_2^+(\text{CH}_2)_3\text{Si}(\text{OCH}_3)_3\text{Cl}^-$
4	$\text{H}_2\text{N}-\text{C}_6\text{H}_4-\text{CH}_2-\text{C}_6\text{H}_4-\text{NH}_2$ $\text{OCN}(\text{CH}_2)_3\text{Si}(\text{OCH}_3)_3$	HMPA	130	8	$\text{H}_2\text{N}-\text{C}_6\text{H}_4-\text{CH}_2-\text{C}_6\text{H}_4-\text{NHCNH}(\text{CH}_2)_3\text{Si}(\text{OCH}_3)_3$

第 1 表 (続表-1)

化合物	原 料	溶 媒	条 件		生 成 物
			温 度 ℃	時間	
5	$\text{H}_2\text{N}-\text{C}_6\text{H}_4-\text{O}-\text{C}_6\text{H}_4-\text{NH}_2$ $\text{O}=\text{C}(\text{H})-(\text{CH}_2)_2\text{Si}(\text{OCH}_3)_3$	DMAC	130	12	$\text{H}_2\text{N}-\text{C}_6\text{H}_4-\text{O}-\text{C}_6\text{H}_4-\text{NH}-\text{C}(\text{H})(\text{OH})-(\text{CH}_2)_2\text{Si}(\text{OCH}_3)_3$
6	$\text{H}_2\text{N}-\text{C}_6\text{H}_4-\text{O}-\text{C}_6\text{H}_4-\text{NH}_2$ $\text{CH}_2=\text{CHCH}_2\text{O}(\text{CH}_2)_3\text{Si}(\text{OCH}_3)_3$	DMSO	130	10	$\text{H}_2\text{N}-\text{C}_6\text{H}_4-\text{O}-\text{C}_6\text{H}_4-\text{NHCH}_2\text{CH}(\text{OH})\text{CH}_2\text{O}(\text{CH}_2)_3\text{Si}(\text{OCH}_3)_3$
7	$\text{H}_2\text{N}-\text{C}_6\text{H}_4-\text{O}-\text{C}_6\text{H}_4-\text{NH}_2$ $\text{Cl}(\text{CH}_2)_3\text{Si}(\text{OCH}_3)_3$	HMPA	140	20	$\text{H}_2\text{N}-\text{C}_6\text{H}_4-\text{O}-\text{C}_6\text{H}_4-\text{NH}_2^+(\text{CH}_2)_3\text{Si}(\text{OCH}_3)_3\text{Cl}^-$
8	$\text{H}_2\text{N}-\text{C}_6\text{H}_4-\text{O}-\text{C}_6\text{H}_4-\text{NH}_2$ $\text{OCN}(\text{CH}_2)_3\text{Si}(\text{OCH}_3)_3$	D M F	120	5	$\text{H}_2\text{N}-\text{C}_6\text{H}_4-\text{O}-\text{C}_6\text{H}_4-\text{NHCNH}(\text{CH}_2)_3\text{Si}(\text{OCH}_3)_3$

第 1 表 (続き-2)

化合物	原 料	溶 媒	条 件		生 成 物
			温 度 ℃	時間	
9	$\text{H}_2\text{N}-\text{C}_6\text{H}_4-\text{SO}_2-\text{C}_6\text{H}_4-\text{NH}_2$ $\text{O}=\text{C}(\text{H})-(\text{CH}_2)_2\text{Si}(\text{OCH}_3)_3$	D M F	130	10	$\text{H}_2\text{N}-\text{C}_6\text{H}_4-\text{SO}_2-\text{C}_6\text{H}_4-\text{NH}-\text{C}(\text{H})(\text{OH})-(\text{CH}_2)_2\text{Si}(\text{OCH}_3)_3$
10	$\text{H}_2\text{N}-\text{C}_6\text{H}_4-\text{SO}_2-\text{C}_6\text{H}_4-\text{NH}_2$ $\text{CH}_2=\text{CHCH}_2\text{O}(\text{CH}_2)_3\text{Si}(\text{OCH}_3)_3$	HMPA	140	8	$\text{H}_2\text{N}-\text{C}_6\text{H}_4-\text{SO}_2-\text{C}_6\text{H}_4-\text{NHCH}_2\text{CH}(\text{OH})\text{CH}_2\text{O}(\text{CH}_2)_3\text{Si}(\text{OCH}_3)_3$
11	$\text{H}_2\text{N}-\text{C}_6\text{H}_4-\text{SO}_2-\text{C}_6\text{H}_4-\text{NH}_2$ $\text{Cl}(\text{CH}_2)_3\text{Si}(\text{OCH}_3)_3$	DMSO	140	20	$\text{H}_2\text{N}-\text{C}_6\text{H}_4-\text{SO}_2-\text{C}_6\text{H}_4-\text{NH}_2^+(\text{CH}_2)_3\text{Si}(\text{OCH}_3)_3\text{Cl}^-$
12	$\text{H}_2\text{N}-\text{C}_6\text{H}_4-\text{SO}_2-\text{C}_6\text{H}_4-\text{NH}_2$ $\text{OCN}(\text{CH}_2)_3\text{Si}(\text{OCH}_3)_3$	DMAC	130	5	$\text{H}_2\text{N}-\text{C}_6\text{H}_4-\text{SO}_2-\text{C}_6\text{H}_4-\text{NHCNH}(\text{CH}_2)_3\text{Si}(\text{OCH}_3)_3$

第 1 表 (続き-3)

化合物	原 料	溶 媒	条 件		生 成 物
			温 度 ℃	時間	
13	$\text{H}_2\text{N}-\text{C}_6\text{H}_4-\text{NH}_2$ $\text{O}=\text{C}(\text{H})-(\text{CH}_2)_2\text{Si}(\text{OCH}_3)_3$	DMSO	130	10	$\text{H}_2\text{N}-\text{C}_6\text{H}_4-\text{NH}-\text{C}(\text{H})(\text{OH})-(\text{CH}_2)_2\text{Si}(\text{OCH}_3)_3$
14	$\text{H}_2\text{N}-\text{C}_6\text{H}_4-\text{NH}_2$ $\text{CH}_2=\text{CHCH}_2\text{O}(\text{CH}_2)_3\text{Si}(\text{OCH}_3)_3$	DMSO	130	8	$\text{H}_2\text{N}-\text{C}_6\text{H}_4-\text{NHCH}_2\text{CH}(\text{OH})\text{CH}_2\text{O}(\text{CH}_2)_3\text{Si}(\text{OCH}_3)_3$
15	$\text{H}_2\text{N}-\text{C}_6\text{H}_4-\text{NH}_2$ $\text{Cl}(\text{CH}_2)_3\text{Si}(\text{OCH}_3)_3$	DMSO	140	20	$\text{H}_2\text{N}-\text{C}_6\text{H}_4-\text{NH}_2^+(\text{CH}_2)_3\text{Si}(\text{OCH}_3)_3$
16	$\text{H}_2\text{N}-\text{C}_6\text{H}_4-\text{NH}_2$ $\text{OCN}(\text{CH}_2)_3\text{Si}(\text{OCH}_3)_3$	DMSO	130	5	$\text{H}_2\text{N}-\text{C}_6\text{H}_4-\text{NHCNH}(\text{CH}_2)_3\text{Si}(\text{OCH}_3)_3$

試験例 1

実施例 1 および 2 で得られた新規アミノシラン化合物を使用したエポキシ樹脂積層板の耐熱性と含水率を測定した結果を第 2 表に示す。また、比較のためγ-アミノプロピルトリエトキシシラン（日本ユニカー 関 A-1100）およびγ-グリシドキシプロピルトリメトキシシラン（日本ユニカー 関 A-187）の結果も併記する。

ガラスクロスの処理

実施例 1 および 2 で得られた新規アミノシラン化合物をメタノールに溶解し、固型分 0.5% の溶液を調製する。γ-アミノプロピルトリエトキシシランは、蒸留水に溶解し、固型分 0.5% の溶液を調製し、またγ-グリシドキシプロピルトリメトキシシランは、あらかじめ酢酸で pH 4 に調整した蒸留水に溶解し、固型分 1.0% の溶液を調製する。

上記のそれぞれの溶液に脱油したガラスクロス（日東紡績 関 WE-18K）を浸漬し、スクイズロールで絞り 110℃×10 分間乾燥する。

ラミネート試片の作製

表面処理したガラスクロスに FR-4 タイプのエポキシ樹脂（油化シエルエポキシ 関 エピコート 1045-A-70）を含浸させ、140℃×10 分間乾燥してプレプリグとする。このプレプリグ 8 枚を重ね、上下に銅箔を重ね、170℃×40 kg/cm²×70 分の条件で成型する。全面エッチングによつて銅箔を除去し、50×50 mm の試片を切り出す。

評価方法

(1) ハンダ耐熱試験

試片を 133℃ のプレッシャークツカーで処理した後、260℃ のハンダ浴に 20 秒間浸漬する。試片面のふくれ、またははがれが起こるプレッシャークツカーでの処理時間を求める。

(2) 吸水試験

紙片を 133℃ のプレッシャークツカーで 180 分処理した後、23℃ の蒸留水に 24 時間浸漬し、吸水率を求める。

第 2 表

シラン化合物	プレッシャークツカー 処理時間(分)	吸水率(%)	ガラスクロスの 処理剤の付着率 (%)	ラミネートの 樹脂含有率 (%)
実施例 1	180	0.81	0.11	39.7
実施例 2	165	0.80	0.10	41.0
γ-アミノプロピルトリエトキシシラン	135	0.91	0.09	40.5
γ-グリシドキシプロピルトリメトキシシラン	120	0.95	0.15	39.8

試験例 2

第 1 表の化合物 3 および 6 の新規アミノシラン化合物を使用したポリアミノビスマレイミド樹脂積層板の耐熱性と含水率を測定した結果を第 3 表に示す。また、比較のためγ-アミノプロピルトリエトキシシランおよびγ-グリシドキシプロピルトリメトキシシランの結果も併記する。

ガラスクロスの処理

新規アミノシラン化合物および比較例に用いるシラン化合物の水溶液は、試験例 1 と同様にして調製する。

上記のそれぞれの溶液に脱油したガラスクロス（日東紡績 関 WE-116E）を浸漬し、スクイズロールで絞り 110℃×10 分間乾燥する。

ラミネート試片の作製

表面処理したガラスクロスにポリアミノビスマレイド樹脂（ローンブーラン社ケルイミド 601）と N-メチル 2 ピロリドンの等均一混合物を含浸させ、160℃×7 分間乾燥してプレプリグとする。このプレプリグ 8 枚を重ね、上下に銅箔を重ね

ね、170℃×40kg/cm×70分の条件で成型する。220℃×1時間の後硬化後、全面エッチングによつて銅箔を除去し、50×50mmの試片を切り出す。

評価方法

(1) ハンダ耐熱試験

試片を151℃のプレッシャークツカーで処理した後、290℃のハンダ浴に20秒間浸漬する。試片面のふくれ、またははがれが起こるプレッシャークツカーでの処理時間を求める。

(2) 吸水試験

切り出した試片を50℃の乾燥機で24時間放置した後、23℃の蒸留水に24時間浸漬し、吸水率を求める。

表 3

シラン化合物	プレッシャークツカー 処理時間(分)	吸水率(%)	ガラスクロスの 処理剤の付着率 (%)	ラミネートの 樹脂含有率 (%)
第1表の化合物3	105	0.33	0.13	49.7
第1表の化合物6	105	0.35	0.14	50.1
γ-アミノプロピル トリエトキシシラン	75	0.42	0.11	49.2
γ-グリシドキシプロピル トリメトキシシラン	45	0.48	0.18	49.5

8/2002

Claim 2

Serial No.: 09/844,855

JP 61112086 A2 19860530 JP 1984-233677 19841106
 JP 01013714 B4 19890307

OS CASREACT 106:18807

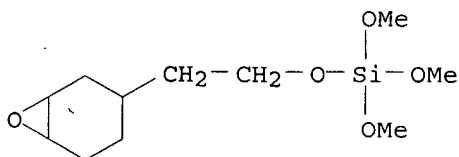
AB The title coupling agents comprise aminosilanes (RNHZNR1Z1Z2)mSi(OR2)4-m
 (I; Z = arom. hydrocarbon group; Z1 = hydrocarbon group; Z2 = C1-6 aliph.
 hydrocarbon group; R = H, C1-4 hydrocarbon group; R1 = H, C1-4 hydrocarbon
 group, arom. hydrocarbon group; R2 = H, C1-4 hydrocarbon group; m = 1-3)
 and/or I hydrohalides. I are heat-resistant and are suitable for treating
 glass fibers in the manuf. of laminates for electronic parts. Thus, 297.5
 parts 4,4'-diaminodiphenylmethane and 832.9 parts Me2SO were heated to
 130.degree. under N, 369.6 g .beta.-(3,4-epoxycyclohexyl)ethyltrimethoxysi
 lane was added dropwise over 1 h, and the mixt. was refluxed at
 130.degree. for .gtoreq.10 h to give I (R, R1 = H, R2 = Me, Z =
 4,4'-C6H4CH2C6H4, Z1 = 6-hydroxy-1,3-cyclohexylidene, Z2 = CH2CH2, m = 1).
 Laminate prepd. from Epikote 1045-A-70 and glass cloth impregnated with I
 showed no change in a pressure cooker test at 133.degree. after 180 min,
 and water absorption of 0.81% after 24-h immersion in H2O following the
 test.

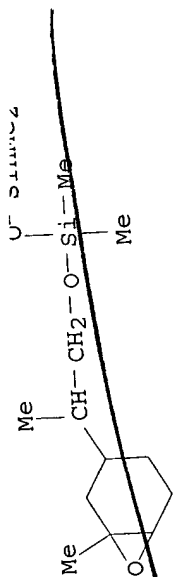
IT 105822-30-8

RL: RCT (Reactant)
 (reaction of, with diamines)

RN 105822-30-8 HCAPLUS

CN Silicic acid (H4SiO4), trimethyl 2-(7-oxabicyclo[4.1.0]hept-3-yl)ethyl
 ester (9CI) (CA INDEX NAME)





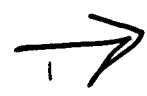
=> D BIB AB HITSTR 2-3

ANSWER 2 OF 3 HCAPLUS COPYRIGHT 2002 ACS

L8 1987:18807 HCAPLUS
 AN 106:18807
 DN Aminosilane coupling agents
 TI Inokuchi, Hiroichi; Watanabe, Akihiko; Yoshida, Shinjiro; Yoshii, Tadashi;
 IN Yonaiyama, Hiroshi
 PA Nitto Boseki Co., Ltd., Japan; Nippon Unicar Co., Ltd.
 SO Jpn. Kokai Tokkyo Koho, 7 pp.
 CODEN: JKXXAF
 DT Patent
 LA Japanese
 FAN.CNT 1
 PATENT NO.

KIND DATE APPLICATION NO. DATE

STIC-EIC 2800 CP4-9C18



*Library said -
no English
translation
available*